



Caractérisation géométrique et optique de plusieurs types d'agrégats.

Marthe Lagarrigue, Sandra Jacquier, Johan Debayle, Jean-Charles Pinoli, Frédéric Gruy

► To cite this version:

Marthe Lagarrigue, Sandra Jacquier, Johan Debayle, Jean-Charles Pinoli, Frédéric Gruy. Caractérisation géométrique et optique de plusieurs types d'agrégats.. Cristal 6 - Cristallisation et Précipitation Industrielle, May 2010, Marseille, France. pp.324-330. hal-00967493

HAL Id: hal-00967493

<https://hal.science/hal-00967493>

Submitted on 31 Mar 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Caractérisation géométrique et optique de plusieurs types d'agrégats

LAGARRIGUE Marthe^a, JACQUIER Sandra^a, DEBAYLE Johan^b, PINOLI Jean-Charles^b et GRUY Frédéric^a

^aENSM-SE, SPIN/LPMG, UMR CNRS 5148

^bENSM-SE, CIS/LPMG, UMR CNRS 5148

158 cours Fauriel 42023 Saint-Étienne Cedex2

Résumé

Les agrégats multi-échelles résultent de l'agglomération de clusters de petites particules, elles-mêmes résultant de l'agrégation de particules encore plus fines. Il existe en général 3 ou 4 niveaux d'agglomération. La géométrie de ces agrégats leur confère des propriétés physiques et chimiques (support catalytique, absorbant) très recherchées par divers industries.

Le but de ce travail est de caractériser ces agrégats multi-échelles de deux façons : d'une part par une méthode optique, et d'autre part par une étude morphologique. Le but final est de trouver un lien possible entre ces deux types de caractérisations.

L'étude optique est réalisée par la théorie de Xu YL (1995) appelée GMM (Generalized Multiparticle Mie solution), et une analyse de paramètres optiques (sections efficaces, paramètre d'asymétrie).

De plus, nous examinons les caractéristiques morphologiques de ces agrégats grâce à l'analyse d'image.

Afin de faire le lien entre les deux études, nous modélisons les agrégats par la géométrie de leur enveloppe convexe que nous fixons tout d'abord simple (sphère, cube, cylindre). A partir de cette modélisation, nous étudions les paramètres optiques avec la méthode GMM, et le but est d'extraire des lois générales suivant la géométrie des agrégats étudiés.

Mots-clés : agrégats multi-échelles, sections efficaces de diffusion, morphologie.

1. Introduction

Les agrégats de particules sont des agrégats formés de cluster, composés eux-mêmes de particules plus petites. Il y a ainsi, en général, 3 ou 4 niveaux d'agglomération. Le but final de notre étude consiste à définir des relations entre les caractéristiques optiques et les caractéristiques géométriques de différents agrégats. En effet, un travail précédent, réalisé par (Gruy et Jacquier, 2008a et 2008b) a montré un lien étroit entre ces deux types de caractérisations.

La première étape de cette étude consiste à modéliser des agrégats multi-échelles avec une géométrie et des propriétés optiques spécifiques. Par la suite, la caractérisation des agrégats est réalisée (Lagarrigue, en cours). Suivant la théorie de Xu appelée GMM (Generalized Multiparticle Mie solution) exposée dans son article (Xu, 1995), le paramètre géométrique étudié est la section efficace de diffusion (*scattering cross section*, notée C_{sca} , en μm^2). De plus, l'analyse optique est centrée sur les agrégats ayant un fort indice optique.

Concernant la caractérisation géométrique, plusieurs paramètres sont successivement étudiés : la compacité, le nombre de particules primaires et le volume des agrégats (le volume de matière).

En utilisant différentes représentations 2D conjointes (optique/géométrie), on analyse la corrélation entre les valeurs de C_{sca} et la géométrie des agrégats.

2. Modélisation des agrégats

2.1 Forme géométrique

Deux niveaux d'échelles sont utilisés pour la modélisation des agrégats. Pour le premier niveau (le plus fin), les particules sont modélisées par des sphères (forme imposée par le modèle optique théorique). Le rayon de ces sphères, pour un agrégat donné, est le même pour toutes. Nous étudions trois valeurs de rayon : 0.01 μm , 0.015 μm et 0.03 μm .

Pour le second niveau d'échelle, les agrégats auront une enveloppe englobante de géométrie connue (Figure 1) : sphère, cube, cylindre, sphéroïde type oblong (en anglais *prolate*) et sphéroïde type aplati (en anglais *oblate*) respectivement. La taille de ces enveloppes est choisie de sorte qu'elles aient le même volume que celui d'une sphère de diamètre 300 μm . La forme cylindrique présentera plusieurs cas : sa forme sera fonction du diamètre de sa base et de la valeur de sa hauteur qui est k -proportionnelle au diamètre de la base, $k > 1$. Pour les cas des sphéroïdes, la valeur des axes a , b et c sont telles que $a=b$ et $c=a.k$, avec $k > 1$ pour le cas du sphéroïde oblong, et pour le cas du sphéroïde aplati : $0 < k < 1$. Dans cet article, les valeurs de k que nous utilisons sont $k \in \{1, 2, 8, 20\}$ pour le cas du cylindre, $k \in \{2, 20\}$ pour le cas de l'oblong et $k \in \{1/2, 1/20\}$ pour le cas aplati.

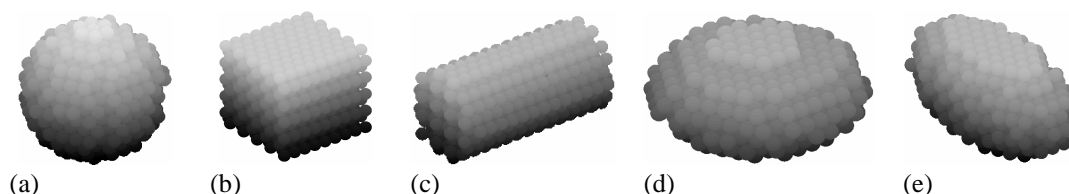


Figure 1: Agrégats avec différentes formes d'enveloppes convexes, pleines ; constitués de 750 à 854 particules primaires de rayon 0.015 μm : (a) sphérique, (b) cubique, (c) cylindrique avec $k=2$, (d) sphéroïdale aplati avec $k=2$, (e) sphéroïdale oblong avec $k=2$.

Nous considérons également quatre types de taux de remplissage (Figure 2) : remplissage à 100% (l'enveloppe convexe est remplie de particules de la façon la plus compacte possible), remplissage à 75% et 50% (correspondant respectivement à la conservation de 75% et 50% des particules du cas du remplissage à 100%, aléatoirement et uniformément choisies), et le cas du remplissage creux, où seules sont conservées les particules situées au bord (au sens discret) du cas du remplissage à 100%.

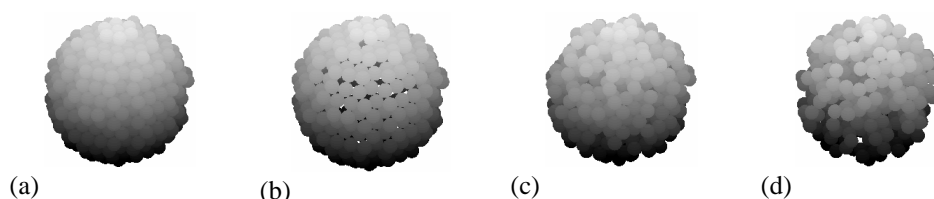


Figure 2: Agrégats d'enveloppe convexe sphérique, avec différents taux de remplissage: (a) remplissage à 100%, (b) remplissage à 75%, (c) remplissage à 50%, (d) remplissage creux.

2.2 Propriétés optiques

Comme dit précédemment, cette étude est concentrée sur des agrégats multi-échelles avec un fort indice optique. Pour ces deux raisons, le Sulfure de Zinc (ZnS) est choisi, suivant les travaux réalisés par Mekki-Berrada et al. (2009) avec un indice optique absolu égal à 2.35. Ces agrégats sont considérés dans l'eau. La longueur d'onde utilisée est celle d'un laser d'Hélium Néon (HeNe) : 0.6328 dans le vide.

3. Caractérisations optique et géométrique

Dans chaque graph qui va suivre sont représentés tous les agrégats avec différents types d'enveloppes convexes, taux de remplissage et rayons de particules primaires.

Le Csca moyen représenté correspond à la valeur moyenne des valeurs de Csca obtenues pour chaque agrégat suivant différentes orientations du faisceau incident sur l'agrégat étudié (environ 150 orientations choisies aléatoirement et uniformément tout autour de l'agrégat).

Chaque marqueur de la légende a une forme en lien avec la géométrie de l'enveloppe convexe de l'agrégat qu'il représente.

3.1 Influence de la compacité

La figure 3 montre conjointement la valeur de Csca moyen et la compacité des différents agrégats. Une distinction par couleur est faite en fonction du taux de remplissage des enveloppes convexes de chaque agrégat.

Nous pouvons voir que les agrégats remplis à 100%, 75% et 50% sont regroupés entre eux en fonction de leur compacité (rapport entre le volume de matière de l'agrégat avec le volume de l'enveloppe convexe), indépendamment du rayon des particules primaires. Pour le remplissage creux la représentation est plus chaotique. Mais il est important de noter que, pour une même valeur de compacité, on peut obtenir différentes valeurs de Csca ; de 0 à $0.16 \mu\text{m}^2$ pour une compacité de 0.65 par exemple. On peut en déduire que ce critère géométrique n'est pas décisif sur la valeur de Csca moyen.

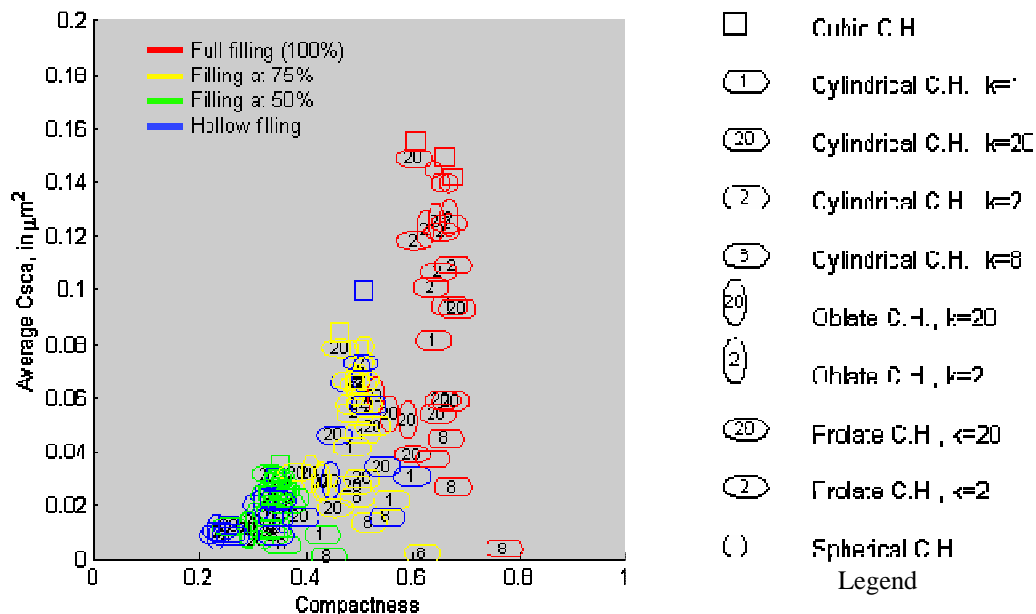


Figure 3: Représentation conjointe de la compacité et du Csca moyen pour chaque agrégat. Une distinction par couleur est faite sur les marqueurs en fonction du taux de remplissage de l'agrégat représenté.

3.2 Influence du volume de matière

Dans la figure 5, une distinction par couleur est faite en fonction de l'isotropie des enveloppes convexes de chaque agrégat. On peut voir sur cette figure que les agrégats suivent deux courbes distinctes. Pour la première (celle qui à la plus grande pente), se trouvent tous les agrégats dont l'enveloppe est plutôt

l'isotropique. Pour la seconde on trouve tous les agrégats dont l'enveloppe est anisotropique. Néanmoins, ce graph n'est pas assez discriminant pour faire une corrélation entre l'isotropie des agrégats et leur valeur moyenne de $Csca$.

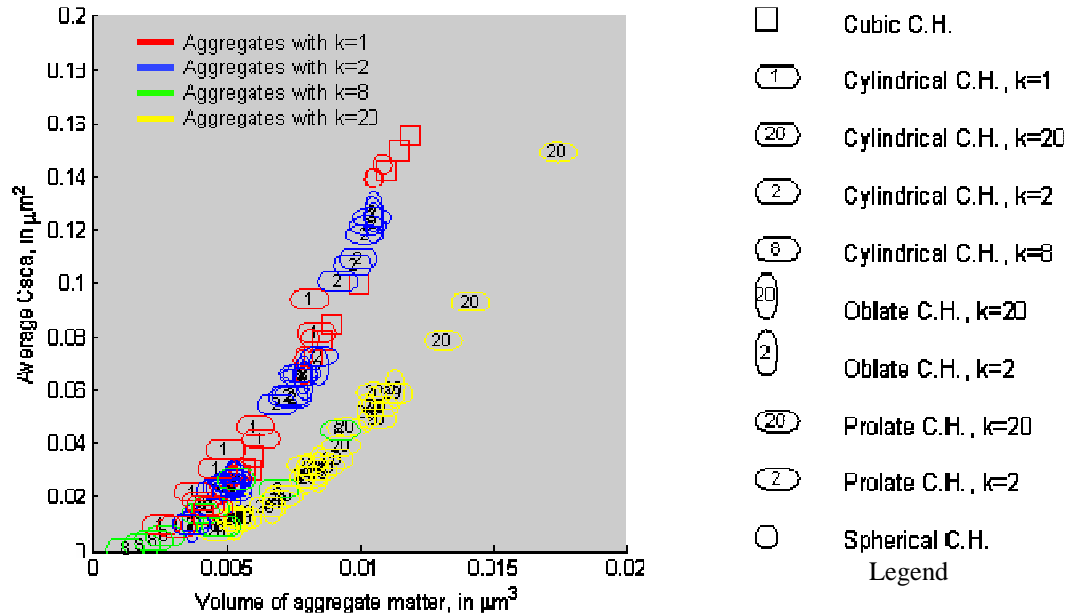


Figure 4: Représentation conjointe du volume de matière (en μm^3) et du $Csca$ moyen de chaque agrégat. Une distinction par couleur est faite en fonction de l'isotropie de chaque agrégat.

3.3 Influence du nombre de particules primaires

3.3.1 Analyse à travers le rayon des particules primaires

La figure 5 montre conjointement la valeur de $Csca$ moyen obtenue et le nombre de particules primaires constituant chaque agrégat. Une distinction en couleur est faite en fonction du rayon des particules primaires composant chaque agrégat.

Il résulte que la taille des particules primaires est un facteur qui affecte fortement la valeur du $Csca$. En effet, les agrégats sont disposés le long de courbes en fonction de rayon des particules primaires qui composent. De plus, il apparaît que les agrégats sont disposés également selon un autre critère : en fonction de leur isotropie. Ceci vient faire échos au graph de la section précédente (Figure 4), où il était montré que les agrégats ne suivent pas la même courbe en fonction de la forme plus ou moins isotropes de leur enveloppe convexe. Donc, il est montré dans ce graph que la taille des particules primaires est un paramètre géométrique important car il permet une distinction plus fine entre les agrégats.

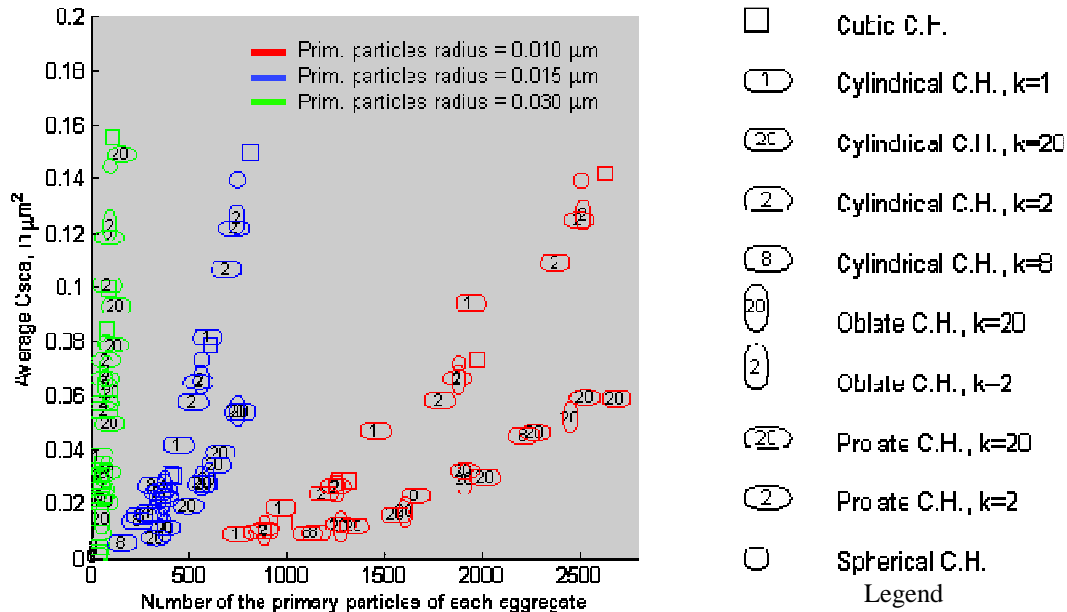


Figure 5: Représentation conjointe du nombre de particules primaires et du C_{sca} moyen de chaque agrégat. Une distinction par couleur est faite en fonction de la taille des particules primaires.

3.3.2 Analyse à travers le taux de remplissage

La figure 6 montre conjointement la valeur de C_{sca} moyen obtenue et le nombre de particules primaires constituant chaque agrégat. Dans cette figure, seuls sont représentés les agrégats isotropes (enveloppe convexe sphérique, cubique, cylindrique avec $k=1$ et $k=2$, ellipsoïdales aplatie et oblong avec $k=2$), et dont le taux de remplissage est 100%, 75% et 50% (on élimine le cas creux qui est à part vis-à-vis des trois autres cas). Une distinction en couleur est faite en fonction du taux de remplissage des enveloppes convexes de chaque agrégat.

Dans le graphique, on peut voir que, en travaillant par tranche de C_{sca} moyen sur des agrégats d'enveloppe convexe isotrope, on peut faire une distinction sur les taux de remplissage considérés et ceci quel que soit le rayon des particules primaires composant l'agrégat et le nombre de particules composant l'agrégat, pour un volume global des agrégats (volume de l'enveloppe convexe) fixé.

Ce graph permet donc de mettre en évidence une distinction possible entre agrégats sous couvert de connaissance du C_{sca} moyen de l'agrégat, d'une isotropie de l'enveloppe convexe et à un volume fixé.

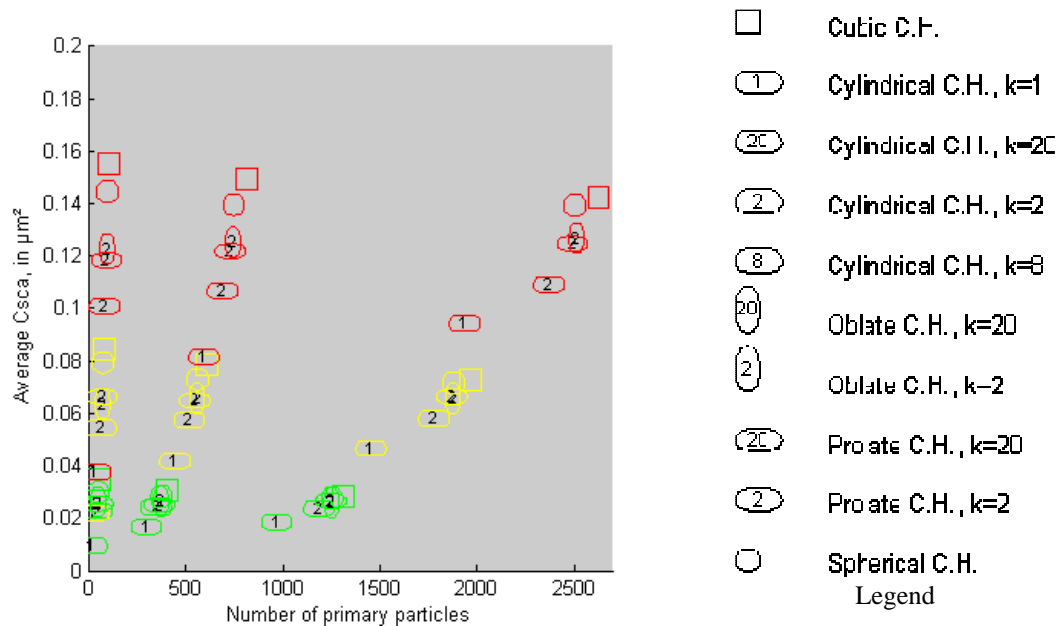


Figure 5: Représentation conjointe du nombre de particules primaires et du Cscat moyen de chaque agrégat. Une distinction par couleur est faite en fonction du taux de remplissage des enveloppes convexes.

4. Conclusion

En utilisant des graphs 2D de représentation conjointe (géométrie/optique), il résulte que plusieurs paramètres géométriques affectent la valeur moyenne de Cscat d'un agrégat : la compacité, le nombre de particules primaires qui le composent, et le volume de matière. Une analyse statistique plus détaillée est nécessaire pour faire une corrélation entre paramètres optiques et paramètres géométriques, en prenant en compte les arrangements spatiaux des ces agrégats de particules.

5. Références

Gruy, F., S. Jacquier, 2008a, The chord length distribution of a two-sphere aggregate. Computational Materials Science 44(2): 218-223.

Jacquier, S., F. Gruy 2008b, Anomalous diffraction approximation for light scattering cross section: Case of random clusters of non-absorbent spheres. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 109(17-18): 2794-2803.

Lagarrigue M. (en cours), PhD thesis, Caractérisation optique et géométrie des agrégats multi-échelles, École Nationale Supérieure des Mines de Saint-Étienne.

Mekki Berrada, M.K., F. Gruy, M. Cournil, 2009, Synthesis of zinc sulphide multi-scale aggregates by homogeneous precipitation-parametric study and mechanism. Journal of Crystal Growth 311(8):2459-2465.

Xu, Y.-l. , 1995, Electromagnetic scattering by an aggregate of spheres, Applied optics 34(21): 4573-4588.